



Caractérisation de matériaux avancés à faible permittivité par Spectroscopie Temporelle d'Annihilation de Positons (PALS)

J. Viret

► To cite this version:

J. Viret. Caractérisation de matériaux avancés à faible permittivité par Spectroscopie Temporelle d'Annihilation de Positons (PALS). Journées Jeunes Chercheurs, Nov 2003, La-Roche-en-Ardenne, France. pp.51-54. in2p3-00025213

HAL Id: in2p3-00025213

<https://hal.in2p3.fr/in2p3-00025213>

Submitted on 12 Dec 2005

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Caractérisation de matériaux avancés à faible permittivité par Spectroscopie Temporelle d'Annihilation de Positons (PALS)

Julien VIRET
LAPP, Annecy le vieux



Résumé

Cet exposé présente le principe et la réalisation d'un détecteur PALS (Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy). Ce détecteur nous permettra de mesurer le temps de vie d'un positon dans un matériau poreux et de caractériser ainsi la taille des pores. Dans une deuxième partie, nous présentons les caractéristiques de ce détecteur et nous comparons ces performances temporelles avec celles des détecteurs existant.

9.1 Introduction

Notre but est de caractériser des matériaux polymères ayant une faible permittivité diélectrique. Ces matériaux entrent dans la conception des puces électroniques. la miniaturisation des circuits électroniques a fait que le nombre de transistors sur une même puce est devenue colossal. Le problème de diaphonie entre les interconnexions devient alors prépondérant. Une solution permettant de réduire ce phénomène est d'améliorer la qualité de l'isolant entre ces interconnexions. Pour cela on abaisse la permittivité diélectrique en insérant, par exemple, des nano-vides dans des polymères. Le but de ce travail va donc être de mesurer la taille de ces pores afin de caractériser ces polymères. Il existe diverses techniques pour la caractérisation, mais comme l'on peut le constater sur la figure 9.1, seule la spectroscopie de positron est adaptée à la taille des pores que nous souhaitons mesurer (quelques nanomètres). le principe physique des détecteurs de PALS pour ce type de mesure utilise la longue durée de vie de l'orthopositronium[3]. Ce travail s'inscrit dans le cadre d'un projet plus général qui aborde également des problèmes de physique fondamentale (extra-dimensions[2], [1]).

Figure 9.1. Taille des défauts accessibles par les dif-

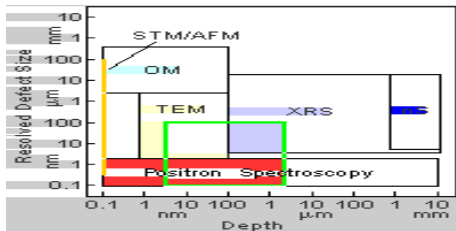


FIG. 9.1 –

férentes techniques en fonction de la profondeur ac-

cessible à l'analyse [5] : microscopie optique (OM), diffusion de neutrons (nS), microscopie électronique par transmission (TEM), microscopie par effet tunnel (STM), microscope à force atomique (AFM), diffusion de rayons X (XRS), spectroscopie d'annihilation de positons. Le cadre vert souligne la région intéressante du point de vue de l'industrie des substrats semi-conducteurs et de l'interconnexion des composants.

9.2 Principe

9.2.1 Principe physique

Dans la matière le positon antiparticule de l'électron va s'annihiler avec un électron[6]. Cette annihilation se fera directement ou après formation d'une particule appelée positronium. L'annihilation directe se fait par émission de deux γ émis à 180° l'un de l'autre. Le positronium existe sous deux états :

- Le para-positronium (pPs) : s'annihile en 2 γ émis à 180° (temps de vie dans le vide $\tau_{v2} = 125\text{ps}$).
- L'ortho-positronium (oPs) : s'annihile en 3 γ (temps de vie dans le vide $\tau_{v3} = 142000\text{ps}$).

En raison de sa longue durée de vie intrinsèque, l'oPs est particulièrement bien adapté à la mesure des dimensions de pores dans un matériau. Dans un tel matériau la durée de vie dépendra de la densité électronique car son positron pourra s'annihiler avec un électron de la matière (phénomène de pick off : annihilation en 2 γ).

En particulier si un oPs est formé dans un pore d'un matériau nano-poreux, le phénomène de pick off ne pourra se produire qu'à l'occasion d'un choc sur les parois du pore.

Le nombre de choc, donc la taille du pore, sera ainsi reliée à la durée de vie de l'oPs dans le matériau.

9.2.2 Principe de mesure du temps de vie

Sur la figure 9.2 est représenté schématiquement le processus de mesure du temps de vie. Une source de ^{22}Na émet un positron et quasi-simultanément un γ de 1,28MeV dont les directions d'émissions ne sont pas corrélés. La détection du γ de 1,28 MeV permet de détecter le temps T_0 d'émission du positon. Le positon pénètre

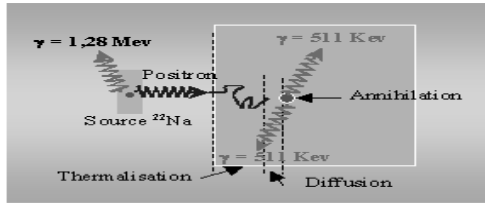


FIG. 9.2 –

alors dans le matériau que l'on souhaite caractériser. Après une phase de thermalisation et de diffusion il a perdu suffisamment d'énergie pour s'annihiler suivant une des trois possibilités précédemment citées. La détection d'un des γ de 511 keV permet de déterminer le temps T_1 d'annihilation. Sur la figure 9.3 on peut

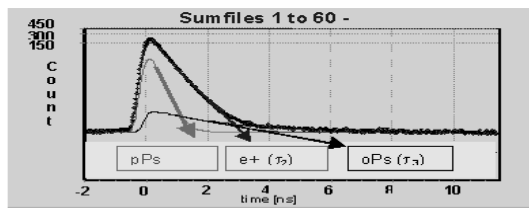


FIG. 9.3 –

observer le spectre obtenu par PALS ($T=T_1-T_0$)[4]. Ce spectre comporte un grand nombre d'événements de manière à avoir une statistique suffisante pour permettre la déconvolution des trois exponentielles correspondant respectivement à l'annihilation directe, la durée de vie du pPs, la durée de vie de l'Ops et ainsi retrouver la pente de temps de vie correspondant à l'orthopositronium (τ_3).

Les positons émis par une source de ^{22}Na présentent un spectre d'énergie très large (0-550keV[7]). Leur profil d'implantation est donnée par : $P(x) = \exp(-\mu x)$ [8] où $\mu(\text{cm}^{-1}) = 16\rho(g.\text{cm}^{-3}).E_{max}^{-1.43}(\text{Mev})$ [8]

Comme ce profil dépend de l'énergie du positon et de la densité du matériau, par principe, à partir d'une source de ^{22}Na on n'accéderas qu'à une valeur moyenner sur la profondeur du matériau. (voir figure 9.4).

Pour obtenir une information en fonction de la pro-

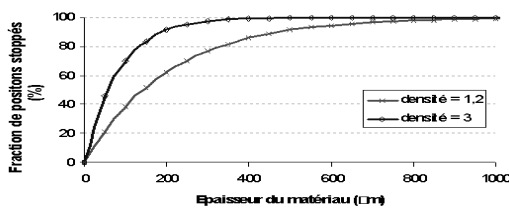


FIG. 9.4 –

fondeur du matériau il faut disposer d'un faisceau de positons.

9.2.3 Détection des γ

Nous devons détecter un γ de 1,28MeV et un gamma de 511 keV. Chacun de nos détecteurs comprend un scintillateur et un photomultiplicateur (voir schéma 9.5).

Nous savons qu'au premier ordre notre résolution en

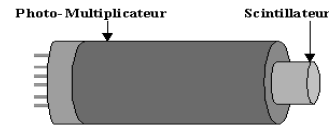


FIG. 9.5 –

temps est de : $\frac{\tau}{\sqrt{N}}$. Où τ est le temps de décroissance du scintillateur plus la variation du temps de transit dans le photo-multiplicateur et N est le nombre de photo-electrons détectées. De manière à obtenir la meilleure fonction de résolution (la plus petite possible) nous avons choisi un scintillateur rapide, le BaF2 et un photo-multiplicateur complémentaire le XP2020Q.

9.3 Principe de détection

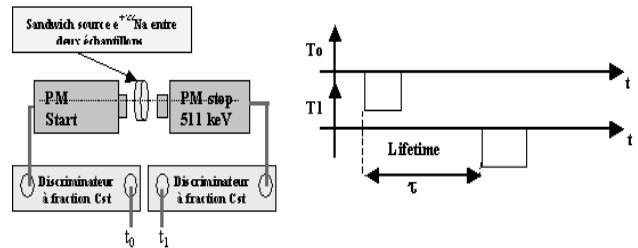


FIG. 9.6 –

La figure 9.6 représente le schéma d'un détecteur "classique". Une source de ^{22}Na est place en sandwich entre de deux échantillons identiques. Chaque détecteur est suivi d'un discriminateur à fraction constante qui permet une mesure temporelle précise.

Ce discriminateur permet par ailleurs une sélection en énergie (voir figure 9.7). Si un γ de type

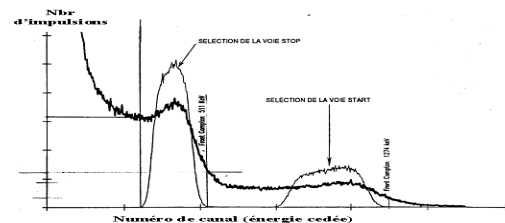


FIG. 9.7 –

Start(1,28MeV) est détecté sur la voie Start, on déclenche un compteur de temps au temps T_0 , l'arrivée d'un gamma de type stop (511 keV) arrête le compteur

au temps T_1 .

Le tracé d'un histogramme représentant le temps de vie ($T=T_0-T_1$) est donc effectué on-line.

9.4 Détecteur réalisé au LAPP

9.4.1 Principe de notre PALS

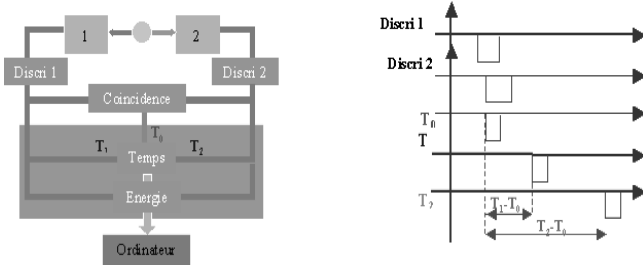


FIG. 9.8 –

Le PALS réalisé est proche de celui décrit précédemment avec des modifications qui vont nous permettre d'améliorer ses performances.

Ces modifications concernent :

- L'utilisation d'un trigger défini par la présence des deux signaux (1,28 MeV et 511 keV).
- La mesure des temps et énergies qui sont enregistrés sur disque.

Les seuils des discriminateurs 1 et 2 sont relativement bas pour permettre d'accepter des événements de types 511keV et 1,28MeV. Une fois les données enregistrées, un programme d'analyse va nous permettre de les traiter et ainsi réaliser le spectre de temps de vie off line. Un des avantages est la multiplication par deux de l'angle solide (donc 12 heures de mesure au lieu de 24 heures) puisque chaque détecteur peut être un Start ou un Stop.

La sélection off line des seuils correspondant aux 511keV et 1,28MeV permet plus de souplesse.

Il est possible, à partir de la mesure des énergies, d'effectuer une vérification de la stabilité des gains des photo-multiplicateurs au court du temps.

9.4.2 Optimisation de la résolution

Comme indiqué précédemment la résolution en temps au premier ordre est $\frac{\tau}{\sqrt{N}}$. Ou τ est le temps de décroissance du scintillateur plus la variation du temps de transit dans le photomultiplicateur et N le nombre de photons détectés.

τ est fixé par le scintillateur et le photo-multiplicateur utilisés, seul la valeur de N peut être optimisée de manière à améliorer la résolution temporelle.

Pour cela on utilise une graisse optique adaptée pour le couplage de la photo-cathode et du scintillateur. Par ailleurs on doit optimiser un réflecteur sur les faces du cristal. Après plusieurs tests le téflon est apparu comme le meilleur enrobage. Cette étude est encore en cours.

9.4.3 Mesure de la résolution

La résolution du détecteur est mesurée en utilisant une source de ^{60}Co , émission quasi simultanée de deux γ à 1,17MeV et 1,33MeV. Celle-ci est utilisée parce qu'on obtient un seul pic claire sur chacun des détecteurs. La figure 9.9 représente le spectre en énergie. La

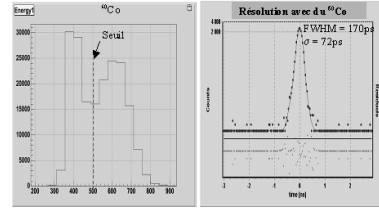


FIG. 9.9 –

figure 9.9 représente la résolution expérimentale obtenue par un fit gaussien (sigma=72ps).

Le tableau 9.10 montre la comparaison des résultats

Année	Auteur	FWHM avec du ^{60}Co	Type de cristaux
1999	Becvar, Cizek	235 ps	BaF2
2000	Cizek	220 ps	BaF2
2001	H.Saito (digital)	140 – 170 ps	BaF2
2003	Barthe	218 ps	Plastique
2003	Viret et al	170 ps	BaF2

FIG. 9.10 –

expérimentaux obtenu avec différents détecteurs.

9.5 Conclusions et perspectives

Nous avons réalisé un détecteur qui a de bonnes caractéristiques de résolution temporelle (FWHM = 170ps).

L'enregistrement sur disque permet de faire des analyses off line.

L'utilisation d'un trigger permet de réduire le bruit de fond.

le fait que nous ayons deux compteurs parfaitement symétriques nous permet d'améliorer les taux de comptage par un facteur 2. Il nous faut achever l'optimisation de la collection de lumière et finaliser le programme d'acquisition (contrôle des gains des Photomultiplicateurs, etc...)

Nous étudions la possibilité de nous affranchir du Discriminateur à fraction constante en utilisant la mesure en énergie.

Par la suite nous envisageons d'augmenter le nombre de détecteur pour obtenir un angle solide plus grand.

Enfin nous entrerons dans la phase de validation de notre banc de mesure en faisant une étude croisée avec d'autres Laboratoires ainsi qu'une comparaison avec d'autres techniques sur des échantillons références. ”

Remerciements

Je remercie J.Ballansat pour tout son soutien en matière de mécanique. Je remercie C.Joram et A.Braem pour leur grande participation lors de mon étude sur la collection de lumière

je remercie N.D.Alberola et J.Colas pour m'avoir accueillis dans leur laboratoire. Je remercie C.Bas et D.Sillou pour leurs aides et leur conseil au cours de ce travail.

Ces JJC ont représenté ma première participation à une conférence et je tiens à remercier les organisateurs et en particulier, M.Olsoen, F.Hubaut et O.Bouhali pour m'avoir offert cette opportunité.

Références

- [1] An apparatus to search for mirror dark matter via the invisible decay of orthopositronium in vacuum. A. Badechter, A.S. Belov, P. Crivelli, M. Felcini, W. Fetscher, S.N. Gninenko, N.A. Golubev, M.M. Kirsanov, L.L. Kurschikov, J.P. Peigneux, A. Rubbia, D. Sillou. hep-ex/0311031.
Can the mirror world explain the orthopositronium lifetime puzzle ?, R.Foot, S.N. Gninenko. Phys Lett. B 480, 171 (2000).
- [2] Extra dimensions and invisible decay of orthopositronium. S.N.Gninenko, N.V.Krasnikov and A.Rubbia, phys.rev.D67,5012(2003).
Positronium physic beyond the standard model. S.N.Gninenko, N.V.Krasnikov and A.Rubbia, Modern Phys.Lett.A17,1713(2002)
- [3] R.Krause-Rehberg, Leipner, H.S, Introduction into positron annihilation, 1988, [http ://www.ep3.uni-halle.de/positrons/talks/Intro.pdf](http://www.ep3.uni-halle.de/positrons/talks/Intro.pdf)
- [4] Corine Bas, Cette mesure a été effectuée à Ghent, communication privée
- [5] Materials Science at the LLNL Positron Facility. Lawrence Livermore Laboratory - University of California -USA
- [6] Bas, C. ; Barthe, M.-F ; Desgardin, P. ; Pinel, E. ; Neyertz, S ; Mercier, R. ; Alberola, N. D.
Polyimide films characterized by positron annihilation Doppler broadening using a variable-energy positron beam.
In 6th European technical symposium on Polyimides and high-temperature polymers (STEPI 6), Montpellier, France, LEM/MAO, Montpellier, France, 2002.
- [7] S.Y.F. Chu, L.P. Ekström, B. Firestone, Table of Radioactive Isotopes, LBNL Isotopes Project - LUNDS Universitet, Version 2.0, February 1999, [http ://nucldata.nuclear.lu.se/NuclearData/toi/](http://nucldata.nuclear.lu.se/NuclearData/toi/)
- [8] W.Brandt et R.Paulin, Positron implantation profile effects in solids, Physical Review B15(5), 1977, p2511